ORSAY
Série A
N° d'Ordre :
1153

GENERATION DE POLARITONS PAR EFFET RAMAN STIMULE DANS LE QUARTZ

ARTICLE PRINCIPAL

recouvrant en partie la thèse de Doctorat ès-sciences Physiques

enregistrée au C.N.R.S. sous le Numéro AO 9.199

BIRAUD-LAVAL Suzanne

soutenue le 21 juin 1973 à l'UNIVERSITE DE PARIS-SUD
Centre d'ORSAY

devant le Jury

MM. GRIVET
KASTLER
DUCUING
LOUDON

Classification
Physics Abstracts
2.660 — 8.822

DISPERSION DES POLARITONS ORDINAIRES DANS LE QUARTZ

S. BIRAUD-LAVAL (*)

Institut d'Electronique Fondamentale, Université Paris-XI, Bâtiment 220, 91405 Orsay, France

(*Reçu le 17 janvier 1974, révisé le 22 février 1974*)

Résumé. — L'excitation cohérente des polaritons dans le quartz, par la méthode à deux faisceaux, permet d'obtenir expérimentalement les courbes de dispersion. On en déduit les forces d'oscillateurs des modes de type E du quartz. Les valeurs trouvées sont relativement différentes de celles données en spectroscopie infrarouge.

Abstract. — Coherent excitation for polaritons in quartz is obtained by a two-beam method. We get experimental dispersion curves, from which we calculate the oscillator strength for the E-modes of quartz. Our values are rather different from those given by infrared spectroscopy.

1. **Introduction.** — Dans un cristal polaire, certaines vibrations du réseau s'accompagnent d'une variation périodique du moment dipolaire de la maille élémentaire. Ce moment dipolaire introduit un couplage entre les vibrations mécaniques et un champ électromagnétique dans le cristal. Les modes propres du système cristal-rayonnement sont alors des modes couplés ; les particules associées sont des polaritons et ont un caractère mixte photon-phonon. Nous ne considérerons ici que des polaritons associés à des phonons optiques.

Lorsqu'on excite de tels polaritons, leur caractère photon correspond à l'existence d'une onde électromagnétique de même fréquence, c'est-à-dire dans le domaine infrarouge [1]. Ceci peut conduire à la réalisation de générateurs cohérents, émettant dans l'infrarouge lointain, et de fréquence continûment réglable en utilisant la dispersion du milieu associée aux polaritons.

Pour réaliser une telle source, il faut exciter les polaritons de façon cohérente. Lorsque le mode optique de vibrations mis en jeu présente l'activité Raman, on peut étudier les polaritons par diffusion de la lumière et les exciter de façon cohérente par effet Raman stimulé. Mais cela nécessite généralement une densité de puissance très élevée du faisceau de pompage (quelques dizaines de gigawatts par cm^2) et le cristal peut être détérioré.

Pour observer l'effet Raman stimulé avec des densités de puissance beaucoup plus faibles, nous avons utilisé une méthode originale, qui avait été proposée par A. Kastler [2] pour exciter des ondes hypersonores dans un diélectrique, et que nous avons transposée à l'excitation des modes optiques de vibration d'un cristal.

Lorsqu'on envoie dans le milieu matériel deux faisceaux lumineux cohérents et puissants, dont la différence de fréquence est égale à la fréquence des polaritons que l'on veut engendrer, l'interaction Raman, correspondant au schéma

$$\text{photon } 1 \rightarrow \text{photon } 2 + \text{polariton}$$

est d'emblée stimulée [3]. En effet, le nombre de photons Stokes, correspondant ici au faisceau 2, est important dès le début de l'interaction, même pour des puissances faibles des faisceaux cohérents incidents.

L'intensité des phénomènes non linéaires mis en jeu augmentant rapidement avec les puissances incidentes, il faut cependant disposer de faisceaux assez puissants pour étudier les polaritons par cette méthode. Nous avons utilisé des puissances de l'ordre du mégawatt par cm^2.

L'interaction est mise en évidence par la mesure des variations de puissance des faisceaux lumineux : atténuation du faisceau 1 de plus haute fréquence et amplification du faisceau 2 [4]. On peut également détecter directement le rayonnement infrarouge émis [5].

L'utilisation de la méthode à deux faisceaux pour l'excitation des polaritons présente un certain nombre d'avantages par rapport aux méthodes habituelles de diffusion Raman spontanée ou stimulée.

(*) Cet article recouvre une partie de la thèse de Doctorat d'Etat soutenue le 21 juin 1973 à la Faculté des Sciences d'Orsay, Université Paris-XI, enregistrée au C. N. R. S. sous le numéro A. O. 9199.

Digitized by the Internet Archive
in 2026

https://archive.org/details/IA41548019_0032

L'observation de la diffusion Raman spontanée vers l'avant, pour de très petits angles de diffusion, est difficile, alors que la méthode à deux faisceaux permet d'observer les phénomènes pour des angles aussi faibles qu'on le désire, les deux faisceaux pouvant même être colinéaires. Le caractère de cohérence pourrait être obtenu en mettant en jeu l'effet Raman stimulé conventionnel, avec un seul faisceau incident. Mais dans ce cas, l'émission de l'onde Stokes cohérente se fixe d'elle-même à la fréquence pour laquelle le gain est maximum. Par contre, dans la méthode à deux faisceaux, on peut faire varier de façon continue la différence de fréquence $\omega_1 - \omega_2$ entre les deux faisceaux incidents. On peut donc étudier la raie Raman dans son ensemble.

L'interaction est d'autant plus importante que $\omega_1 - \omega_2$ est proche de la fréquence centrale du mode de vibration considéré.

La méthode à deux faisceaux regroupe donc des avantages de l'un et l'autre types de diffusion employés habituellement. Nous avons étudié par cette méthode les polaritons dans un cristal de quartz [6].

2. **Dispositif expérimental.** — Pour mettre en œuvre la méthode à deux faisceaux, il faut disposer de deux sources lumineuses cohérentes et puissantes, dont l'une au moins est de fréquence continûment réglable. Les lasers à colorants répondent à ces exigences.

Le schéma du montage est donné par la figure 1. Deux lasers à colorants sont excités par le même laser à rubis, ce qui assure la puissance et la synchronisation des deux impulsions émises.

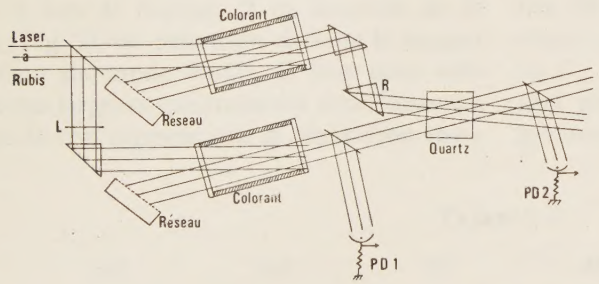

FIG. 1. — Dispositif expérimental.

Chaque cuve de colorant est placée dans une cavité résonnante sélective formée par une fenêtre de la cuve et un réseau de diffraction (1 200 traits/mm). La rotation du réseau permet de faire varier la longueur d'onde d'émission du colorant dans une plage d'une centaine d'Angström pour une concentration donnée. En jouant sur la concentration, on obtient une émission cohérente de longueur d'onde réglable entre 7 100 Å et 7 600 Å environ. Le colorant utilisé est de l'iodure de 3-3′ diéthylthiadicarbocyanine en solution dans l'éthanol.

Le faisceau émis par le colorant est polarisé linéairement dans la même direction que la lumière de pompage délivrée par le laser à rubis. La polarisation est donc réglée en jouant sur celle du laser à rubis. Elle peut être différente sur les deux voies grâce à la lame demi-onde L.

Chaque laser à colorant délivre des impulsions dont la durée à mi-hauteur est de 10 ns, et dont la puissance crête est de l'ordre de quelques mégawatts. La largeur spectrale de l'émission est inférieure à 0,5 Å.

Pour des écarts en fréquence entre les deux faisceaux incidents supérieurs à $400\ \mathrm{cm}^{-1}$, on peut simplifier le montage en n'utilisant qu'un seul laser à colorant et une fraction de l'émission du laser à rubis.

L'interaction est mise en évidence par mesure de l'atténuation du faisceau de plus haute fréquence ou de l'amplification du faisceau de plus basse fréquence. Ceci est réalisé par comparaison des signaux délivrés par les photodiodes PD1 et PD2, le signal de la photodiode PD1 servant de référence pour chaque tir laser. Les deux impulsions sont photographiées sur l'écran d'un oscilloscope bicanon Tektronix 555, pour pouvoir être ensuite mesurées.

L'angle de diffusion est ici l'angle θ entre les deux faisceaux incidents. Cet angle est réglable par rotation du système de renvoi R. Il est ajusté de façon précise à l'aide d'une lunette autocollimatrice (F500 Micro-Contrôle) dont la rotation est assurée par une vis micrométrique portant un vernier gradué en minutes d'arc.

3. **Résultats expérimentaux.** — Pour chaque valeur de l'angle de diffusion θ, la direction des vecteurs d'onde $\mathbf{k}_1$ et $\mathbf{k}_2$ est fixée. La condition de conservation des vecteurs d'onde détermine alors le vecteur d'onde $\mathbf{k}_3$ de l'onde de polaritons forcée par battement entre les faisceaux incidents :

$$\mathbf{k}_3 = \mathbf{k}_1 - \mathbf{k}_2 \,. \qquad (1)$$

L'angle θ restant faible, on peut écrire cette condition :

$$k_3^2\, c^2 \simeq \{\, \omega_1(n_1 - n_2) + \omega n_2 \,\}^2 + \omega_1\, \omega_2\, n_1\, n_2\, \theta^2 \qquad (2)$$

avec $\omega = \omega_1 - \omega_2$.

Pour étudier uniquement les modes de type E du quartz, on utilise des polarisations croisées pour les deux faisceaux incidents [7] (α_{xz} ou α_{zx}). Selon le signe de $n_1 - n_2$, on obtient pour $\theta = 0$ une valeur plus ou moins grande de k_3, ω étant donné. Pour étudier les courbes de dispersion pour des valeurs de k_3 aussi faibles que possible, on choisit $n_1 - n_2 < 0$ ce qui correspond à une polarisation ordinaire du faisceau 1 et une polarisation extraordinaire du faisceau 2 (α_{xz}).

Les faisceaux se propagent dans un plan perpendiculaire à l'axe optique Oz.

Pour une valeur donnée de θ, on fait varier la fréquence ω_2 de l'un des lasers à colorant, ω_1 étant maintenue fixe. L'amplification du faisceau 2, de plus basse fréquence (ou l'atténuation du faisceau 1), passe par un maximum lorsque $\omega = \omega_1 - \omega_2$ varie

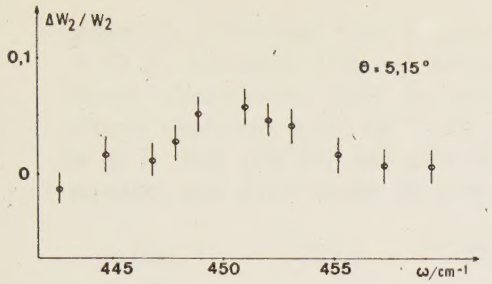

FIG. 2. — Amplification relative du faisceau 2 en fonction de la fréquence $\omega = \omega_1 - \omega_2$. ($\theta = 5{,}15°$; $\omega_3 = 450\ \text{cm}^{-1}$.)

(Fig. 2). La fréquence ω_3 correspondant à ce maximum est retenue pour tracer point par point les courbes de dispersion $\omega_3(\theta)$ des polaritons, dont on peut facilement déduire les courbes $\omega_3(k_3)$.

Nous avons ainsi déterminé expérimentalement les courbes de dispersion relatives aux modes E du quartz (polaritons ordinaires) et observé la diffusion sur les modes longitudinaux lorsque leur fréquence est suffisamment distincte de la fréquence transversale correspondante (Fig. 3).

Nos résultats sont en bon accord avec ceux de J.-F. Scott, L. E. Cheesman et S. P. S. Porto [8] qui ont observé les polaritons associés aux modes de fréquence transversale $1\,072\ \text{cm}^{-1}$, $797\ \text{cm}^{-1}$ et $450\ \text{cm}^{-1}$ par diffusion Raman spontanée.

Pour des valeurs assez grandes de l'angle de diffusion θ, la fréquence des polaritons est égale à la fréquence transversale ω_j du mode considéré. Lorsque $\omega_3 = \omega_j$, le champ électrique associé aux polaritons est pratiquement nul, et on observe uniquement l'effet Raman dû aux vibrations mécaniques du réseau. De la courbe donnant le transfert de puissance du faisceau 1 vers le faisceau 2 en fonction de la fréquence ω (Fig. 2), on peut alors déduire la largeur de raie Raman du mode étudié. Il faut pour cela tenir compte des largeurs spectrales des deux faisceaux de pompage. Si l'on suppose que la répartition spectrale des raies excitatrices est lorentzienne, de largeur δ_1 et δ_2 respectivement à mi-hauteur, on peut montrer [6] que le transfert de puissance est également donné par une lorentzienne de largeur $\Gamma_m + \delta_1 + \delta_2$, où Γ_m est la largeur de raie Raman. Nos valeurs sont peu différentes de celles mesurées en diffusion spontanée [9]. Les résultats sont donnés par le tableau I.

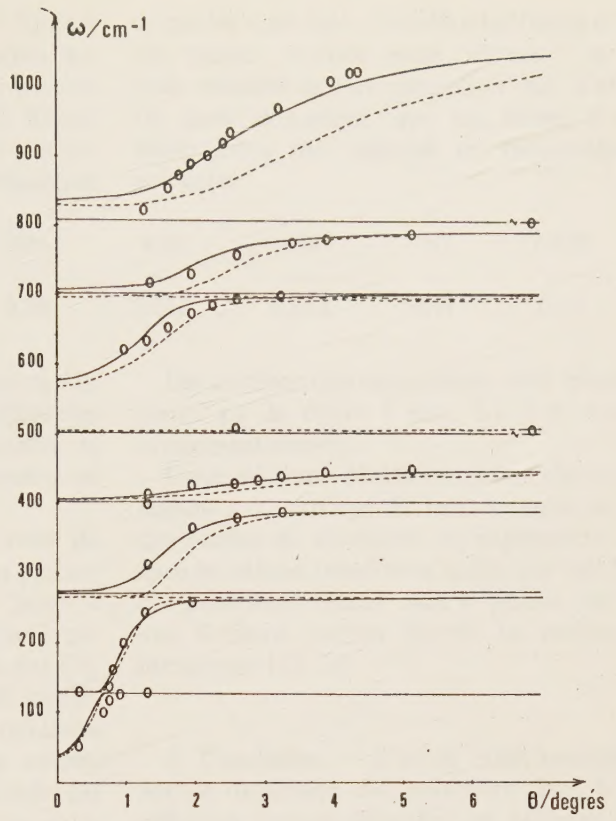

FIG. 3. — Courbes de dispersion. En pointillés : courbes obtenues avec les forces d'oscillateurs données par spectroscopie infrarouge. En traits pleins : courbes obtenues avec les forces d'oscillateurs déterminées par comparaison avec nos points expérimentaux.

TABLEAU I

ω_m (cm^{-1})	128	265	395	452	702	799	1 072
Γ_m (cm^{-1})	$7{,}0 \pm 0{,}5$	$4{,}5 \pm 0{,}5$	$3{,}0 \pm 0{,}5$	$7{,}0 \pm 0{,}5$	$6{,}0 \pm 0{,}5$	10 ± 1	7 ± 1

Nous avons de la même façon observé les deux modes de type A_1 les plus intenses [10] avec des polarisations parallèles des deux faisceaux incidents (α_{zz}) et mesuré les largeurs de raies correspondantes :

ω_m	208 ± 4	462 ± 2
Γ_m	24 ± 1	$6{,}5 \pm 0{,}5$

4. **Discussion.** — La courbe de dispersion des polaritons ordinaires peut être décrite en première approximation par la relation suivante dans laquelle tout amortissement est négligé [11, 12] :

$$\frac{k_3^2\, c^2}{\omega_3^2} = \varepsilon^\infty + \sum_j \frac{S_j\, \omega_j^2}{\omega_j^2 - \omega_3^2} \qquad (3)$$

la somme portant sur les 8 modes de type E.

Pour tracer les courbes théoriques correspondantes, il faut connaître les valeurs des forces d'oscillateur S_j pour les différents modes. Ces forces d'oscillateur ont été déterminées à partir de mesures spectrosco-

piques en infrarouge. Pour le quartz, W. G. Spitzer et D. A. Kleinman [13] ont donné les valeurs des forces d'oscillateurs pour les modes de nombres d'onde supérieurs à 300 cm^{-1}. Ce sont E. E. Russel et E. E. Bell [14] qui ont déterminé celles correspondant aux deux modes de plus basse fréquence, ce qui les a amenés à modifier les forces d'oscillateurs des modes compris entre 300 cm^{-1} et 500 cm^{-1}, leurs mesures ne leur permettant pas d'aller au-delà. On peut considérer que les forces d'oscillateurs, déterminées par mesures en infrarouge, sont les suivantes :

ω_j (cm^{-1})	128,4	265	394	450	697	797	1 072	1 163
S_j	0,000 6	0,050	0,36	0,852	0,018	0,11	0,67	0,010

Lorsqu'on utilise ces valeurs dans l'expression (3), les courbes théoriques obtenues sont assez différentes des résultats expérimentaux, comme le montre la figure 3, sur laquelle ces courbes sont tracées en pointillé.

La détermination expérimentale des courbes de dispersion des polaritons par diffusion Raman permet d'ajuster les valeurs des coefficients S_j, de façon à obtenir un accord satisfaisant entre les courbes expérimentales et les courbes théoriques données par (3). Nous avons pour cela employé une méthode numérique, sur ordinateur (Univac 1110), qui minimise la somme des écarts quadratiques entre la courbe théorique et les points expérimentaux (méthode des moindres carrés non linéaire). La pulsation ω est la variable indépendante. Pour des raisons inhérentes au programme de calcul, nous avons utilisé comme fonction $\varepsilon = k_3^2\, c^2/\omega_3^2$ plutôt que le vecteur d'onde k_3 lui-même. Le calcul a été fait en tenant compte également des fréquences des modes longitudinaux observés. Les résultats sont les suivants :

ω_j (cm^{-1})	128	265	395	452	702	797	1 072	1 163
S_j	0,007	0,25	0,29	0,60	0,018	0,085	0,33	—

Les courbes correspondantes sont tracées en traits pleins sur la figure 3 pour les sept modes étudiés expérimentalement.

Cette méthode de détermination des forces d'oscillateurs a l'avantage de tenir compte de l'ensemble des modes de vibration, les expériences étant faites dans les mêmes conditions quelle que soit la fréquence des polaritons excités dans le milieu, par opposition aux résultats publiés d'après les mesures faites en infrarouge [13, 14].

5. **Conclusion.** — L'étude expérimentale des courbes de dispersion des polaritons dans le quartz par diffusion Raman stimulée, en utilisant la méthode à deux faisceaux, nous a permis de mesurer d'une part les largeurs de raie Raman des modes de type E, et d'autre part de déterminer les forces d'oscillateurs pour ces différents modes.

6. **Remerciements.** — Je remercie vivement M. R. Reinisch pour sa contribution à l'étude théorique des courbes de dispersion des polaritons et l'exécution des calculs sur l'Univac.

Bibliographie

[1] Loudon, R., *Proc. Phys. Soc.* **82** (1963) 393.
[2] Kastler, A., *C. R. Hebd. Séan. Acad. Sci.* **B 259** (1964) 4233 ; **259** (1964) 4535 ; **260** (1965) 77.
[3] Reinisch, R., Biraud-Laval, S., Chartier, G., Paraire, N., *Phys. Rev.* **B.** (A paraître).
[4] Chartier, G., Biraud, S., *Phys. Rev. Lett.* **21** (1968) 1641.
[5] Biraud-Laval, S., Chartier, G., *Phys. Lett.* **A 30** (1969) 177.
[6] Biraud-Laval, S., Thèse d'Etat, Orsay, juin 1973.
[7] Loudon, R., *Adv. Phys.* **13** (1964) 423.
[8] Scott, J. F., Cheesman, L. E., Porto, S. P. S., *Phys. Rev.* **162** (1967) 834.
[9] Zubov, V. G., Osipova, L. P., *Sov. Phys. Crystallogr.* **6** (1961) 330.
[10] Chapet, M., Rapport de stage DEA, Orsay, juin 1971.
[11] Barker Jr., A. S., Loudon, R., *Rev. Mod. Phys.* **44** (1972) 18.
[12] Reinisch, R., Paraire, N., Biraud-Laval, S., *C. R. Hebd. Séan. Acad. Sci.* **B 275** (1972) 829.
[13] Spitzer, W. G., Kleinman, D. A., *Phys. Rev.* **121** (1961) 1324.
[14] Russell, E. E., Bell, E. E., *J. Opt. Soc. Am.* **57** (1967) 341.